

ЭЛЕКТРОННАЯ КОМПОНЕНТНАЯ БАЗА И ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНЫЕ СИСТЕМЫ УПРАВЛЕНИЯ

УДК 621.38-022.532

КРОССБАР-МАССИВЫ МЕМРИСТОРОВ НА ОСНОВЕ ПОЛИ-П-КСИЛИЛЕНА ДЛЯ НЕЙРОМОРФНЫХ ПРИЛОЖЕНИЙ

© 2022 г. Б. С. Швецов¹, А. А. Миннеханов^{1, *}, К. Ю. Черноглазов¹

¹ *Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, Москва, Россия*

**E-mail: Minnekhanov_aa@nrcki.ru*

Поступила в редакцию 23.12.2021 г.

После доработки 12.01.2022 г.

Принята к публикации 12.01.2022 г.

Мемристивные устройства перспективны для создания носимых и биосовместимых вычислительных систем благодаря биосовместимости и многоуровневому характеру резистивного переключения, что позволяет им выступать в роли синапсов в аппаратных нейроморфных вычислительных системах (НВС). Исследованы мемристивные элементы $\text{Cu}/\text{поли-п-ксилилен}/\text{Au}$, созданные в виде поперечных структур в кроссбар-топологии. Обнаружено, что эти структуры обладают высокой стабильностью, низкими рабочими напряжениями ($< 2 \text{ В}$), а также могут изменять свою проводимость согласно биоподобным правилам пластичности, зависящей от времени прихода импульсов, что делает их подходящими для создания аппаратной НВС. Разработка мемристоров на основе поли-п-ксилилена открывает перспективы для аппаратной реализации НВС с возможностью обучения по биоподобным алгоритмам.

DOI: 10.56304/S2782375X2201020X

ВВЕДЕНИЕ

В последнее десятилетие наблюдается бурное развитие технологий машинного обучения для решения когнитивных задач [1, 2]. Основные результаты, включая коммерческие приложения, были получены в отношении сенсорного интеллекта, предназначенного для распознавания объектов окружающей среды, текстов, речи, отдельных сцен и т.д. [3, 4]. Однако большая часть последних разработок, основанных на программных искусственных нейронных сетях (ИНС), имеет недостаток в виде чрезвычайно сложных алгоритмов и, как следствие, чрезмерного энергопотребления. Создание аппаратных нейроморфных вычислительных систем (НВС) поможет справиться с этим недостатком [5]. Исходной точкой развития таких систем стало создание мемристоров (резисторов с памятью) [6], которые могут выступать в качестве искусственных синаптических связей в ИНС [7]. Одним из основных факторов при использовании мемристоров в качестве синаптических весов является их пластичность, т.е. способность устанавливать и сохранять различные состояния проводимости [8].

В недавнее время различные НВС на основе мемристоров, такие как сети с долговременной краткосрочной памятью [9, 10], перцептроны [11, 12], спайковые НВС [13, 14] и другие [15–17], были реализованы аппаратно. Это демонстрирует

высокий уровень разработки алгоритмов и возможность их реализации в задачах обучения как с учителем, так и без него. Для последнего чаще всего используется биоподобное правило **STDP** (*spike-timing-dependent plasticity* – пластичность, зависящая от времени прихода импульсов) [18]. Биологические нейронные сети обучаются путем изменения веса синапсов, связывающих нейроны. Правило STDP заключается в следующем: если пресинаптические нейроны генерируют импульс непосредственно перед постсинаптическими (это указывает на причинно-следственную связь), то синаптический вес увеличивается, и наоборот, если постсинаптические нейроны генерируют импульс непосредственно перед пресинаптическими (нарушение причинно-следственной связи), то синаптический вес уменьшается [19]. При меньшей разнице во времени прихода спайков происходит большее увеличение (или уменьшение) синаптического веса. Таким образом, механизм STDP может быть использован для автономного обучения нейронных сетей без учителя [20].

В [21] было показано, что пара аппаратных нейронов, соединенных через наноконтактный мемристор, может успешно изменять свой мемристивный вес (аналог синаптического веса) в соответствии с правилами STDP. Однако для многих биомедицинских приложений, таких как протезирование и помощь людям с ограниченными

ми возможностями, также необходимо разрабатывать НВС на основе биосовместимых материалов. Одним из таких материалов является одобренный FDA (*Food and Drug Administration* – управление по санитарному надзору за качеством пищевых продуктов и медикаментов США) полимер парилена (поли-*p*-ксилилен, или **PPX**), который активно используется в медицине и электронике [22]. Ранее было продемонстрировано, что мемристоры на основе PPX обладают хорошими мемристивными характеристиками и высокой пластичностью, что позволяет использовать их в качестве синаптических связей в аппаратных спайковых НВС [23–26]. Но для использования мемристоров в реальных нейронных сетях одиночные структуры непригодны, и для интеграции в вычислительную микроэлектронику требуется кроссбар-топология [27]. В настоящей работе продемонстрирована возможность реализации правил STDP для низковольтных PPX-мемристоров в кроссбар-топологии. Результаты в будущем помогут реализовать спайковые НВС на основе PPX-мемристоров, способные к обучению как с учителем, так и без него.

МЕТОДЫ

Для изготовления образцов в кроссбар-геометрии на подложке SiO₂/Si методом фотолитографии с использованием литографа Heidelberg 66fs были изготовлены восемь нижних шин Cr (20 нм)/Au (200 нм) шириной 80 мкм (нижние электроды). Затем при помощи системы вакуумного напыления PDS 2010 был нанесен слой PPX толщиной ~80 нм. Далее четыре верхние шины Cu шириной 100 мкм и толщиной ~500 нм были нанесены на нижние электроды методом магне-

тронного распыления через теньевую маску. В результате была получена матрица с 8 × 4 мемристивными элементами, площадь которых составляла 8 × 10⁻³ мм². Изготовленные образцы Cu/PPX/Au/Cr/SiO₂/Si в дальнейшем будем называть мемристорами Cu/PPX/Au.

Вольт-амперные характеристики (ВАХ) мемристивных устройств, а также кривые стабильности (*retention*) и STDP измеряли с помощью аналитической зондовой станции 3S SWIN EPS4; импульсы напряжения подавали с помощью источника-измерителя Keithley 2636B, запрограммированного в LabView. Все эксперименты проводили при комнатной температуре (293 К).

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1а представлена мемристивная структура в кроссбар-топологии. Измерения ВАХ образцов Cu/PPX/Au показали наличие в них эффекта резистивного переключения (РП) с характерным гистерезисом (рис. 1б). Для предотвращения перегрева и последующей деградации структуры были установлены токи ограничения величиной +0.5 и -50 мА. Напряжение изменялось с шагом 0.1 В длительностью 100 мс. Отметим, что отношение $R_{\text{off}}/R_{\text{on}}$ для мемристоров Cu/PPX/Au в кроссбар-топологии оказалось ниже, чем для ранее изученных одиночных структур. Так, одиночные мемристоры Cu/PPX/ITO обладали $R_{\text{off}}/R_{\text{on}} > 10000$ ($R_{\text{off}} \sim 1$ МОм и $R_{\text{on}} \sim 100$ Ом) [23]; в то же время кроссбар-мемристоры имеют $R_{\text{off}}/R_{\text{on}} > 1000$ ($R_{\text{off}} \sim 500$ кОм и $R_{\text{on}} \sim 300$ Ом).

При этом напряжения РП схожи с таковыми у одиночных мемристоров и составляют 1.2 ± 0.3 В

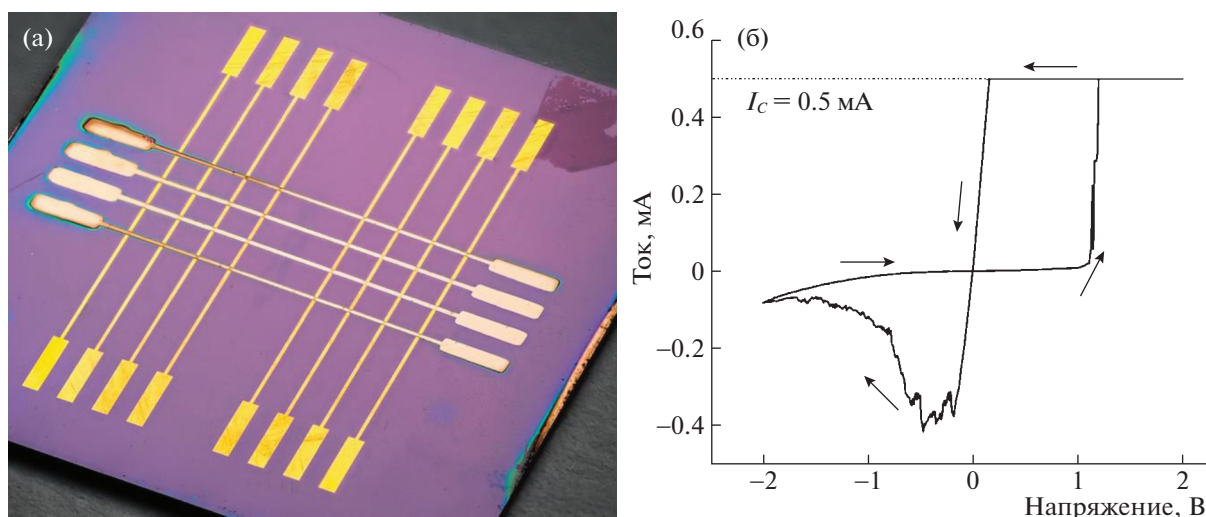


Рис. 1. Мемристивный элемент в кроссбар-топологии (а), вольт-амперная характеристика образца Cu/PPX/Au, стрелки демонстрируют направление кривой во время измерения (б).

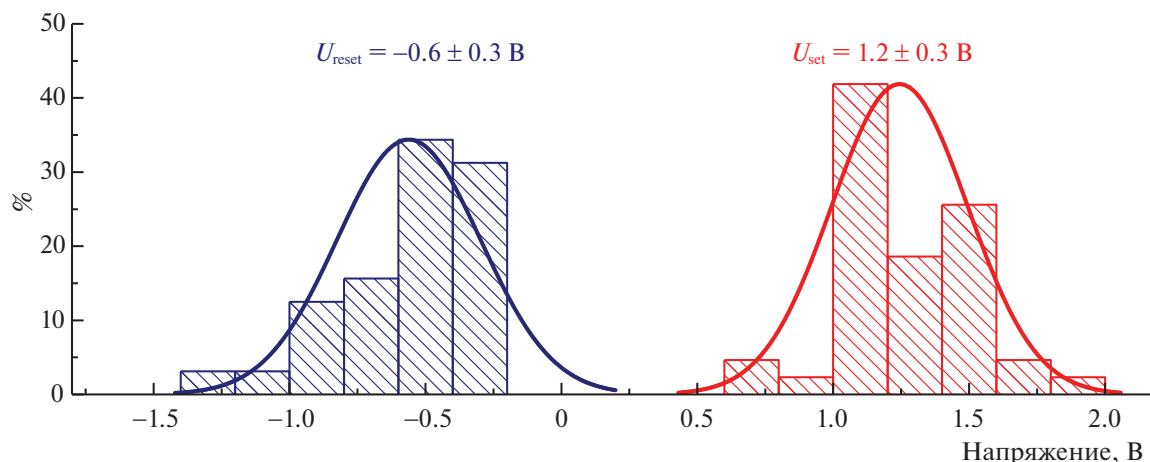


Рис. 2. Гистограмма значений напряжения при переключении мемристора Cu/PPX/Au в низкоомное состояние (U_{set} , справа) и в высокоомное состояние (U_{reset} , слева).

для переключения из высокоомного состояния в низкоомное (U_{set}) и -0.6 ± 0.3 В для переключения из низкоомного состояния в высокоомное (U_{reset}), в то время как среднее значение U_{set} одиночных структур составляло 1.5 ± 0.5 В [23]. На рис. 2 продемонстрированы полученные гистограммы распределения напряжений переключения. Напряжения РП менее 1.5 В можно считать малыми, что позволяет применять изготовленные мемристивные кроссбар-структуры во многих приложениях, включая НВС.

Также отметим, что образцы имеют множественные стабильные промежуточные резистивные состояния (рис. 3а). Для установления необходимого резистивного состояния использовали итеративный алгоритм “запись–проверка” высокой точности (не хуже 0.5%) [28]. Как и в случае с одиночными структурами, мемристоры в кроссбар-геометрии демонстрируют не менее 16 состояний [23]. Такой пластичности и стабильности достаточно для большинства вычислительных приложений, в том числе для использующих правила STDP [23]. Высокую пластичность кроссбар-мемристоров можно объяснить филаментным характером их РП: металлические мостики из меди, замыкающие верхний и нижний электроды структуры, могут иметь разный диаметр и, соответственно, разную проводимость [24]. Это свойство позволяет мемристорам Cu/PPX/Au эффективно выступать в качестве синапсов в аппаратных НВС, поскольку проводимость может быть представлена как аналог синаптического веса (силы связи между нейронами) и изменяться квазинепрерывно.

Недавно в мемристорах был обнаружен эффект квантования проводимости при комнатной температуре. Этот эффект возникает, когда диаметр d проводящих мостиков уменьшается до

$d \leq \lambda_F$ (λ_F – фермиевская длина волны электрона) и транспорт электронов становится баллистическим [29, 30]. В этом случае проводимость структуры G может быть выражена следующим образом:

$$G = n \cdot 2e^2/h = nG_0, \quad n = (1, 2, 3, \dots),$$

где e – заряд электрона, h – постоянная Планка, множитель 2 учитывает вырождение по спину, а $G_0 = 2e^2/h$ представляет фундаментальный квант проводимости со значением 77.5 мкСм [31]. Исследование одиночных мемристивных структур на основе РРХ показало наличие в них эффекта квантования проводимости, что подтвердило предложенную модель переключения с малым числом филаментов [32].

Интерес к изучению данного эффекта проецируется и на кроссбар-структуры. На рис. 3б представлена зависимость проводимости $G(t)$ мемристивной структуры Cu/PPX/Au от времени. Уровни проводимости G , выраженные в единицах G_0 , были установлены при помощи итерационного алгоритма. Из рис. 3б видно, что уровни квантованной проводимости стабильно сохраняются в течение 300 с, причем наблюдается не только целочисленный эффект квантования проводимости, но и полужель, при котором n может принимать значения 0.5, 1, 1.5 и т.д. Кроме того, многие зависимости $R(t)$, представленные на рис. 3а, также соотносятся с уровнями квантованной проводимости: сопротивление 4.5 кОм соответствует проводимости $3 G_0$, 6.5 кОм – $2 G_0$, 12 кОм – $1 G_0$ и т.д. Из этого можно сделать вывод, что механизм РП в кроссбар-мемристорах на основе РРХ вероятнее всего не отличается от такового в одиночных структурах и заключается в образовании одиночных или малочисленных медных филаментов в толще РРХ.

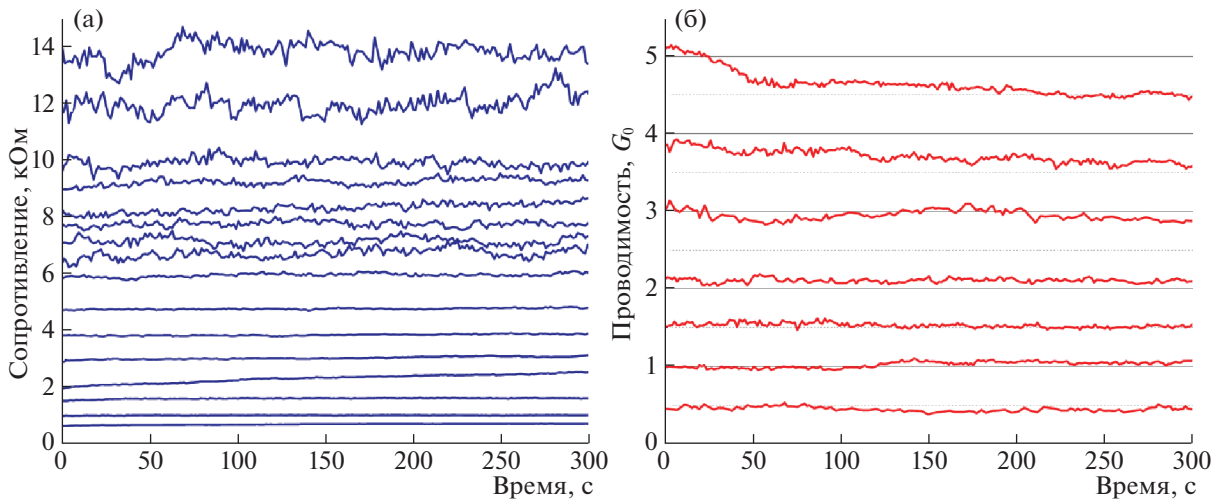


Рис. 3. Зависимости сопротивления резистивных состояний (а) и проводимости в единицах кванта проводимости G_0 (б) мемристивной структуры Cu/PPX/Au от времени.

Для демонстрации возможности изменения резистивного состояния мемристоров на основе PPX по правилам STDP нижний электрод (Au) мемристивной структуры Cu/PPX/Au выступал в качестве пресинаптического входа, а верхний электрод (Cu) рассматривался как постсинаптический. В качестве пре- и постсинаптических спайков использовали идентичные импульсы напряжения разнополярной треугольной формы. Амплитуда импульсов составляла 0.7 В, так как такой одиночный импульс меньше напряжения РП и не может привести к изменению проводимости структуры. При этом амплитуда суммы пре- и постсинаптических спайков достигала значения 1.4 В, что выше напряжения РП мемристора и должно приводить к изменению его проводимости. Длительность импульсов составляла 400 мс (дискретизация 25 мс). Если рассматривать проводимость мемристора G как аналог синаптического веса, то изменение проводимости ΔG будет эквивалентно изменению данного веса: $\Delta G = G_f - G_i$, где G_f и G_i – конечные и начальные значения проводимости соответственно. Напряжение чтения при измерении проводимости составляло 0.1 В до и после подачи последовательности импульсов. Постсинаптические импульсы подавали после (до) пресинаптических импульсов с переменным временем задержки Δt в диапазоне от -500 до 500 мс с шагом 50 мс. Для каждого значения времени задержки проводили по десять измерений и результирующее значение ΔG выбирали как медианное значение.

На рис. 4 представлено окно STDP (зависимость ΔG от Δt) для мемристивной структуры Cu/PPX/Au в кроссбар-геометрии, полученное при подаче треугольных импульсов. Начальная проводимость мемристора составляла 0.2 мСм.

Данное значение было выбрано как промежуточное в окне (R_{on} , R_{off}) для демонстрации наибольшего эффекта. Из рисунка видно, что результаты эксперимента подчиняются правилу STDP, наблюдаемому в биологических системах: синаптическая потенциация ($\Delta G > 0$) наблюдалась при $\Delta t > 0$, а синаптическая депрессия ($\Delta G < 0$) – при $\Delta t < 0$.

Полученные результаты демонстрируют, что изготовленные кроссбар-мемристоры Cu/PPX/Au могут изменять свое резистивное состояние по правилам STDP и благодаря низким рабочим напряжениям могут быть успешно имплементированы в качестве строительных блоков аппаратных

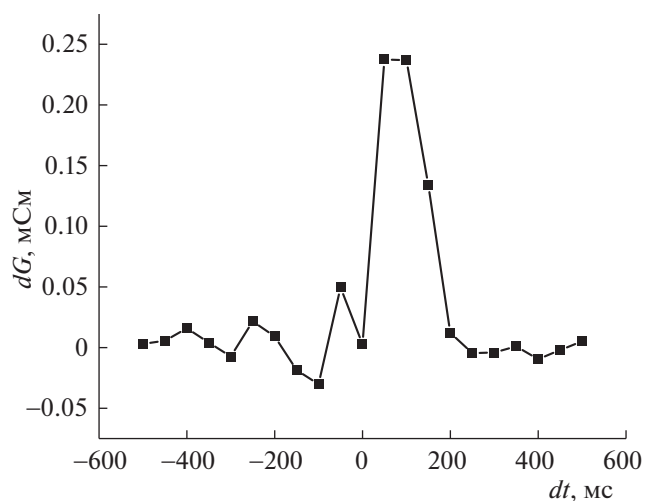


Рис. 4. Зависимость изменения проводимости dG (окно STDP) мемристора Cu/PPX/Au от разницы во времени dt прихода на него спайков в форме парных треугольных импульсов.

НВС. Высокие уровни стабильности и пластичности при этом обеспечивают длительное время сохранения резистивных состояний, достаточное для большинства приложений, таких как ИНС, кратковременная память или вычисления в памяти. Однако отметим, что для практических применений необходимо развитие технологии создания кроссбар-мемристоров, что позволит получать структуры с высокой воспроизводимостью характеристик. В связи с этим требуются дальнейшие детальные исследования воспроизводимости РРХ-мемристоров при различных параметрах синтеза.

ВЫВОДЫ

Исследованы мемристивные элементы Cu/PPX/Au, созданные в виде поперечных структур в так называемой кроссбар-геометрии. Изучены основные свойства этих структур, показано наличие высокой стабильности и низких напряжений переключения, подходящих для создания нейроморфных систем. Образцы демонстрировали эффект квантования проводимости аналогично одиночным РРХ-мемристорам, что позволило предположить образование единичных проводящих мостиков в толще РРХ в процессе РП. Помимо того, что кроссбар-структуры не уступают по основным параметрам одиночным мемристорам, было показано, что эти устройства также могут изменять свою проводимость с помощью правил STDP. Полученные результаты демонстрируют, что разработка мемристоров на основе РРХ открывает перспективы для аппаратной реализации НВС с возможностью обучения по биоподобным алгоритмам.

Авторы выражают благодарность А.А. Несмелову и Ю.В. Грищенко (НИЦ “Курчатовский институт”) за помощь в изготовлении образцов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 20-07-00696) в части исследования характеристик мемристоров кроссбар-массива и НИЦ “Курчатовский институт” (приказ № 2753) в части синтеза кроссбар-массива и изучения возможности изменения проводимости отдельных мемристоров парными спайками с использованием оборудования Ресурсных центров.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Kuzum D.* // IEEE Nanotechnol. Mag. 2018. V. 12. № 3. P. 4.
<https://doi.org/10.1109/MNANO.2018.2849799>
2. *Zhu J., Zhang T., Yang Y. et al.* // Appl. Phys. Rev., 2020. V. 7. № 1. P. 011312.
<https://doi.org/10.1063/1.5118217>
3. *Li C., Hu M., Li Y. et al.* // Nat. Electron. 2018. V. 1. № 1. P. 52.
<https://doi.org/10.1038/s41928-017-0002-z>
4. *Zhang Y., Wang Z., Zhu J. et al.* // Appl. Phys. Rev. 2020. V. 7. № 1. P. 011308.
<https://doi.org/10.1063/1.5124027>
5. *Xia Q., Yang J.J.* // Nat. Mater. 2019. V. 18. № 4. P. 309.
<https://doi.org/10.1038/s41563-019-0291-x>
6. *Strukov D.B., Snider G.S., Stewart D.R. et al.* // Nature. 2008. V. 453. № 7191. P. 80.
<https://doi.org/10.1038/nature06932>
7. *Wang Z., Wu H., Burr G.W. et al.* // Nat. Rev. Mater. 2020. V. 5. № 3. P. 173.
<https://doi.org/10.1038/s41578-019-0159-3>
8. *Shi T., Wang R., Wu Z. et al.* // Small Struct. 2021. V. 2. № 4. P. 2000109.
<https://doi.org/10.1002/ssstr.202000109>
9. *Li C., Wang Z., Rao M. et al.* // Nat. Mach. Intell. 2019. V. 1. № 1. P. 49.
<https://doi.org/10.1038/s42256-018-0001-4>
10. *Ji X., Pang K.Y., Zhao R.* // Nanoscale. Royal Society of Chemistry. 2019. V. 11. № 46. P. 22446.
<https://doi.org/10.1039/c9nr04455h>
11. *Bayat F.M., Prezioso M., Chakrabarti B. et al.* // Nat. Commun. 2018. V. 9. № 1. P. 2331.
<https://doi.org/10.1038/s41467-018-04482-4>
12. *Demin V.A., Erokhin V.V., Emelyanov A.V. et al.* // Org. Electron. 2015. V. 25. P. 16.
<https://doi.org/10.1016/j.orgel.2015.06.015>
13. *Brivio S., Conti D., Nair M. V. et al.* // Nanotechnology. 2019. V. 30. № 1. P. 015102.
<https://doi.org/10.1088/1361-6528/aae81c>
14. *Hansen M., Zahari F., Kohlstedt H. et al.* // Sci. Rep. 2018. V. 8. № 1. P. 8914.
<https://doi.org/10.1038/s41598-018-27033-9>
15. *Ryu J.H., Kim B., Hussain F. et al.* // Appl. Surf. Sci. 2021. V. 544. № October 2020. P. 148796.
<https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2020.148796>
16. *Serb A., Corna A., George R. et al.* // Sci. Rep. 2020. V. 10. № 1. P. 1.
<https://doi.org/10.1038/s41598-020-58831-9>
17. *Dalgaty T., Castellani N., Turck C. et al.* // Nat. Electron. 2021. V. 4. № 2. P. 151.
<https://doi.org/10.1038/s41928-020-00523-3>
18. *Saighi S., Mayr C.G., Serrano-Gotarredona T. et al.* // Front. Neurosci. 2015. V. 9. № MAR. P. 51.
<https://doi.org/10.3389/fnins.2015.00051>
19. *Markram H., Lübke J., Frotscher M. et al.* // Science. 1997. V. 275. № 5297. P. 213.
<https://doi.org/10.1126/science.275.5297.213>
20. *Masquelier T., Guyonneau R., Thorpe S.J.* // Neural Comput. 2009. V. 21. № 5. P. 1259.
<https://doi.org/10.1162/neco.2008.06-08-804>
21. *Emelyanov A.V., Nikiruy K.E., Serenko A.V. et al.* // Nanotechnology. 2020. V. 31. № 4. P. 045201.
<https://doi.org/10.1088/1361-6528/ab4a6d>
22. *Fortin J.B., Lu T.-M.* // Chem. Vap. Depos. Polym. 2004. P. 102.
<https://doi.org/10.1007/978-1-4757-3901-5>

23. *Minnekhanov A.A., Emelyanov A.V., Lapkin D.A. et al.* // Sci. Rep. 2019. V. 9. № 1. P. 10800.
<https://doi.org/10.1038/s41598-019-47263-9>
24. *Minnekhanov A.A., Shvetsov B.S., Martyshov M.M. et al.* // Org. Electron. 2019. V. 74. P. 89.
<https://doi.org/10.1016/j.orgel.2019.06.052>
25. *Cai Y., Tan J., Yefan L. et al.* // Nanotechnology. 2016. V. 27. № 27. P. 275206.
<https://doi.org/10.1088/0957-4484/27/27/275206>
26. *Chen Q., Lin M., Wang Z. et al.* // Adv. Electron. Mater. 2019. V. 5. № 9. P. 1800852.
<https://doi.org/10.1002/aelm.201800852>
27. *Gi S., Yeo I., Chu M. et al.* // ISOCC 2015 – Int. SoC Des. Conf. SoC Internet Everything. 2016. P. 215.
<https://doi.org/10.1109/ISOCC.2015.7401790>
28. *Nikiruy K.E., Emelyanov A.V., Demin V.A. et al.* // Tech. Phys. Lett. 2018. V. 44. № 5. P. 416.
<https://doi.org/10.1134/S106378501805022X>
29. *Zhu X., Su W., Liu Y. et al.* // Adv. Mater. 2012. V. 24. № 29. P. 3941.
<https://doi.org/10.1002/adma.201201506>
30. *Krishnan K., Muruganathan M., Tsuruoka T. et al.* // Adv. Funct. Mater. 2017. V. 27. № 10. P. 1605104.
<https://doi.org/10.1002/adfm.201605104>
31. *Landauer R.* // IBM J. Res. Dev. 2000. V. 44. № 1. P. 251.
<https://doi.org/10.1147/rd.441.0251>
32. *Shvetsov B.S., Minnekhanov A.A., Nesmelov A.A. et al.* // Semiconductors. 2020. V. 54. № 9. P. 1103.
<https://doi.org/10.1134/S1063782620090250>